

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (USPTO)

CT/JP00/05791

14.09.00

日 本 国 特 許 庁
PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

REC'D 03 OCT 2000

WIPO

PCT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

1999年 8月30日

出 願 番 号

Application Number:

平成11年特許願第242759号

出 願 人

Applicant (s):

旭化成工業株式会社

JP00/05791

EJU

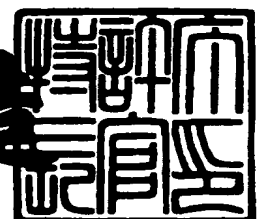
PRIORITY
DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2000年 9月 8日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2000-3072387

【書類名】 特許願
 【整理番号】 X11-00690
 【提出日】 平成11年 8月30日
 【あて先】 特許庁長官 殿
 【国際特許分類】 C25B 9/00 311
 【発明者】

【住所又は居所】 宮崎県延岡市旭町6丁目4100番地 旭化成工業株式
 会社内

【氏名】 野秋 康秀

【発明者】

【住所又は居所】 宮崎県延岡市旭町6丁目4100番地 旭化成工業株式
 会社内

【氏名】 岡本 三郎

【特許出願人】

【識別番号】 000000033

【氏名又は名称】 旭化成工業株式会社

【代表者】 山本 一元

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011187

【納付金】

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 内部液循環できる塩化アルカリ単位電解セル

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 陽極室内上部にプレートが取り付けられた塩化アルカリ単位電解セルであって、陽極室内がプレートと電極とにより形成される通路 B と、プレートと隔壁とにより形成される通路 A とに仕切られ、プレート下端と隔壁の間にスリット状の隙間が形成されており、通路 B の幅が 5 mm ～ 15 mm、プレートと隔壁のスリット状隙間の間隔 W' が 1 mm ～ 20 mm、およびプレートの高さが 300 mm ～ 600 mm であることを特徴とする複極式単位電解セル。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、気液分離室を有するフィルタープレス型単位電解セルを用いてアルカリ金属塩化物水溶液を電解し、塩素とアルカリ金属水酸化物を生産するためのイオン交換膜法塩化アルカリの複極式単位電解セルに関する。

【0002】

【従来の技術】

高電流効率で高純度のアルカリ金属水酸化物を生産するためのイオン交換膜法塩化アルカリ単位電解セルについては、従来より多数提案されている。例えば特開昭 51-43377 号、特開昭 62-96688 号、特表昭 62-500669 号各公報等がある。これらの単位電解セルは、内部に電解液を混合する工夫がなされておらず、そのために電解室内の電解液の濃度分布を均一にするため多量の電解液を循環しなければならない欠点があった。

【0003】

特開昭 61-19789 号公報、特開昭 63-11686 号公報では、電解液を内部循環できる導電性分散体或いは電流分配部材を設けているが、電解セル内の構造が複雑になるなどの欠点があった。

特開平 4-289184 号公報、特開平 8-100286 号公報においても、電解液の内部循環可能な筒状ダクトやダウンカマーを設けているが、やはり電解

セル内の構造が複雑になり製作コストが高くなったり或いは 50 A/dm^2 以上の高電流密で電解しようとするとき電解液濃度分布が大きくなり、イオン交換膜へ悪影響を与えることなどが懸念される。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

イオン交換膜法電解槽を用いて、 50 A/dm^2 以上の高電流密で電解する場合、単位電解セル内での電解液濃度分布に不均一な部分が生じて、イオン交換膜の性能へ悪影響を与える場合がある。この発明の目的は、このような悪影響を防止可能な、安価で簡便な部品を単位電解セルに取り付け、電解液濃度分布を均一にすることにより、イオン交換膜の性能を十分に発揮できる単位電解セルを提供することにある。

【0005】

【課題を解決するための手段】

本発明は、陽イオン交換膜を用いて塩化アルカリ水溶液を電解する電解槽の複極式単位電解セルに関する。

一般に、安定した塩化アルカリの電解を行ない、塩素、水素、苛性ソーダを安価に生産するために要求される事項としては、設備コストが安価であること、低電圧で電解できること、セル内の振動等によりイオン交換膜が破損しないこと、セル内の電解液濃度の分布が均一でイオン交換膜の電圧や電流効率が長期間安定していること等があげられる。

【0006】

このような要求に応じて、近年のイオン交換膜法塩化アルカリ電解における性能の向上はめざましいものがある。特にイオン交換膜、電極、単位電解セルの性能向上は著しく、電力原単位はイオン交換膜法の出現当初の 40 A/dm^2 で 3000 kW/NaOH-t から、近年では 2000 kW/NaOH-t 以下になろうとしている。しかし、設備大型化や省力化、高効率化の要望は最近さらに大きくなってきており、単位電解セルにおいても電解電流密度も当初の 30 A/dm^2 から、現在では 50 A/dm^2 以上で電解できるようにすることが求められている。

【0007】

本発明者等はこのような状況に鑑み、単位電解セルを改良するに当たり、 50 A/dm^2 以上のような高電流密度で安定した電解ができることを目標に検討を進めてきた。このような高電流密度で電解するに当たり、単位電解セルにおいて必要なことは、単位電解セル内の電解液濃度分布が均一であること、単位電解セル内に気泡やガスの滞留部分の無いこと、電解液や気泡・ガスを排出ノズルから払い出す際に、これらが混相となり単位電解セル内に圧力変動が生じて振動を発生させないことである。

【0008】

特にクロルアルカリ電解槽の陽極側においては、気泡の影響が著しい。例えば 40 A/dm^2 、 0.1 MPa 、 90°C の電解条件では、陽極室上部は気泡が充填しており、ガス液比が80%以上にもなる部分が発生する。このようなガス液比の大きな部分は電流密度が大きくなればなるほど拡大する傾向がある。

このようなガス液比の大きな部分は流動性に欠けるため、局所的な電解液の濃度低下が生じたり、ガスの滞留部分が生じる場合があった。このような電極室上部のガス液比の大きな部分をできるだけ減少させるためには、電解圧力を大きくすることや、電解液の循環量を大幅に増大するなどの方法はあるが、安全上の問題や設備建設コストが高くなる傾向があり好ましくない。

【0009】

40 A/dm^2 以上の高電流密度においては、ガスの発生量が増加することによる気泡の影響が顕著に現れ、単位セル内の流動攪拌が不十分になる部分が生じたり、陽極室内での食塩消費速度が早まること等により、単位電解セル内の電解液濃度分布が不均一になる場合がある。

本発明は、電解セル上部の濃度分布が不均一になることを防止するものである。

【0010】

すなわち本発明は、陽極室内上部にプレートが取り付けられた塩化アルカリ単位電解セルであって、陽極室内がプレートと電極とにより形成される通路Bと、プレートと隔壁とにより形成される通路Aとに仕切られ、プレート下端と隔壁の

間にスリット状の隙間が形成されており、通路 B の幅が 5 mm ~ 15 mm、プレートと隔壁のスリット状隙間の間隔 W' が 1 mm ~ 20 mm、およびプレートの高さが 300 mm ~ 600 mmであることを特徴とする複極式単位電解セルに関する。

【0011】

以下に図面を参照して本発明を説明するが、本発明は図面のみに限定されるものではない。

図 1 および図 2 は、本発明の単位電解セルの陽極室または陰極室上部の一例を示す概念図（断面図）である。

図 3 は本発明の複極式単位電解セルの例を示す正面図、図 4 は図 3 の A - A' 間の断面図である。

【0012】

図 5 は本発明のセルを用いた複極式電解槽の例を示す組立図、図 6 はプレートのない電解セルの概念図（断面図）である。

本発明は、極室内上部にプレートを設置して堰を作ることにより、電解液とガスをそれぞれ分離した状態で排出すると同時に、電解セル下部へ電解液を戻すことを可能としたものである。

図 1 において、プレート 3 は、セル上部の通電部分に設置され、隔壁 1 とプレート 3 により通路 A が、電極 8 とプレート 3 により通路 B が形成される。

【0013】

プレート 3 の下端は隔壁 1 とスリット状の隙間 4 を形成しており、この隙間 4 から、プレート 3 の上部から流れ込んだ液の一部が極室内に流入し、通路 A を介して液が循環するような構造になっている。

電極 8 とプレート 3 により形成される通路 B は、電解液と気泡、ガスの混合物が通過する。電解液と、電解により生成したガスと気泡との混合物が、プレート 3 の上端と電解室上端の間を通過して通路 A 側に達し、電解液はプレート 3 を伝わり通路 A の底部に流れ落ちる。底部に流れ落ちた電解液は、ガスと電解液とに分離した状態で図 3 の排出ノズル 5 から排出され、一部はスリット状隙間 4 から電解槽内へ戻る。したがって堰により電解液の内部循環を起こすことができるの

で、電解液やガスの滞留もなく、 50 A/dm^2 以上の高電流密度でも濃度分布の均一化が達成できる。

【0014】

通路Aの断面積は、製作のしやすさや製作コスト面から、通常 10 cm^2 以上で 200 cm^2 以下のものが用いられる。排出ノズルでの圧力損失の変化にともなうセル内圧力変動（振動）を全くなくすることができる。

プレート3は、通路Bの気泡を含む液と、通路Aにある電解液を隔て、ガスの上昇力によって電解液を運び上げる通路でもある。その高さHは $300\text{ mm}\sim 600\text{ mm}$ が好ましい。この理由は、できるだけ液循環を多くするためには、通路Bでのガス液混合相のヘッドと通路Aのヘッド差を大きくとることが必要になるため、プレートの高さを大きくすることが有利であるからである。

【0015】

プレート上端と通電部の上端との間隔Sは、 $5\text{ mm}\sim 100\text{ mm}$ の範囲が好ましい。この間隔Sが狭すぎると、ガスが滞留しやすくなり、広すぎると通電部上部の電解液の攪拌不足となり、イオン交換膜に悪影響を与えることになる。

通路Bの間隔は、プレート3と電極4の間隔Wとすると、Wの大きさは $5\text{ mm}\sim 15\text{ mm}$ の範囲で有れば、圧力損失も少ないので好ましい。 15 mm を超えると通路Bを通過する電解液の上昇速度が遅くなって攪拌効果が得にくい傾向にあり、電解液濃度が低下する可能性がある。これはガスや液が通過する際に圧力損失が大きくなり、通路Bを通過する電解液量が減少する場合がある。

【0016】

プレートと隔壁のスリット状の隙間の間隔W'は、 $1\text{ mm}\sim 20\text{ mm}$ 、さらには $1\text{ mm}\sim 10\text{ mm}$ 程度が好ましい。 1 mm 未満では、圧力損失が大きくなり通路Aを介して電解液の循環が不良となる。 20 mm を超えると、スリット部分から電解液やガスがショートパスして通路Aに入り込むため、液の循環が生じなくなる場合がある。

プレートにより形成される堰の形状は、種々考えられるが、例えば図1に示す形状や図2に示す形状が考えられる。

【0017】

このような堰は、例えば図3に示すような複極式の単位電解セルに取り付けると都合が良い。図3のA-A'間の断面を図4に示した。

以上述べたように、本発明の塩化アルカリ単位電解セルは、堰を取り付けることにより、単位電解セル上部の気泡の多い部分の攪拌と内部循環を可能にする構造となっている。従って、 50 A/dm^2 以上の高電流密度でも、単位電解セル内の電解液濃度分布を均一にでき、イオン交換膜への悪影響が全く生じない。

【0018】

【発明の実施の形態】

次に本発明の実施例を示すが、本発明はこの実施例のみに限定されるものではない。

【0019】

【実施例1】

図3と同様の正面形状を持ち、図4と同様の断面形状を持つ複極式単位電解セル枠を8ヶを直列並べ、その両端に図2と同様の堰を有する陽極単位セル及び陰極単位セルを配して電流リード板を取り付け、図5の電解槽を組み立てた。

単位電解セルは、横幅が2400mm、高さが1280mmで、陽極側及び陰極側ともに図1と同様な構造とした。すなわち、板厚みが1mmのチタン製プレート、通路Bの幅W10mm、高さH500mmで設け、隔壁とプレート下端との隙間W'を3mmとした。また、チタン製トラスが、隔壁とプレート上端との隙間Sを10mmとした。

【0020】

陽極は、エキスパンデッドメッシュ加工したチタン板の表面に、ルテニウム、イリジウム、チタンを成分とする酸化物を被覆することにより製作し、陰極はエキスパンデッドメッシュ加工したニッケル板の表面に酸化ニッケルを主成分としたコーティングをプラズマ溶射により製作したものを用了。

このような電解セルに、陽イオン交換膜ACIPLEX（登録商標）F4202を、ガasketを介してはさみ、電解槽を組み立てた。

【0021】

この電解槽の陽極室側に、陽極液として出口塩水濃度が200g/リットルとなるように300g/リットルの塩水を供給し、陰極室側には出口苛性ソーダ濃度が32重量%となるように希薄苛性ソーダを供給し、電解温度90℃、電解時の絶対圧力で0.14MPa、電流密度30A/dm²～60A/dm²の範囲で10日間電解した。

電解中の電解セル内の陽極液濃度分布はセル内の通電部上端から150mm、600mm、1000mm下の位置でセル中央部及びセル両端から各々100mm内側の9点を測定した。その9点のうち最大濃度と最小濃度の差を濃度差として表1に示す。表1からわかるとおり、結果から、60A/dm²でも濃度差は0.35Nであり、ほぼ均一な濃度分布が得られていることがわかる。

【0022】

【実施例2】

堰の構造としては、図2と同様な構造とした。すなわち、高さHは600mmとし、通路Bの幅Wを10mm、隔壁とプレート下端との隙間W'を3mmとした。チタン製プレート上端から陽極室上端までの距離を10mmとした。その他の構造は実施例1と同様の複極式単位電解セルを用いて電解槽を組み立て、全く同様な条件で電解を行った。

電解中の電解セル内の濃度差を表1に示す。この結果から、電解セル内の濃度分布は60A/dm²でも0.35Nであり、ほぼ均一な濃度分布が得られていることがわかる。

【0023】

【比較例】

図6に示す如く堰がない複極式単位電解セルを用い、実施例1と同様に組み込み、同様に電解した。

電解中の電解セル内の濃度差を表1に示す。この結果から、電解セル内の濃度分布は60A/dm²では0.93Nであり、40A/dm²でも0.66Nの濃度差となり、均一な濃度分布が得られていないことがわかる。

【0024】

【表 1】

		電流密度 (A/dm ²)			
		3 0	4 0	5 0	6 0
濃 度 差 (N)	実施例 1	0. 1 7	0. 2 1	0. 2 7	0. 3 5
	実施例 2	0. 2 4	0. 2 8	0. 3 8	0. 5 1
	比較例	0. 5 2	0. 6 6	0. 7 8	0. 9 3

【0 0 2 5】

【発明の効果】

陽イオン交換膜を用いて塩化アルカリ水溶液を電解する複極式単位電解セル上部にプレートで堰を設けることにより、50 A/dm² 以上の高電流密で電解しても、単位電解セル内で電解液が循環するので、電解液濃度分布が均一となり、イオン交換膜の性能を十分に発揮できる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の実施態様の一例を示す極室上部の概念図（断面図）である。

【図 2】

本発明の実施態様の他の例を示す極室上部の概念図（断面図）である。

【図 3】

本発明の複極式単位電解セルの例を示す正面図である。

【図 4】

図 3 の A - A' 間の断面図である。

【図 5】

本発明のセルを用いた複極式電解槽の例を示す、一部を切り欠いた組立図であ

る。

【図6】

堰を設けない電解セルの概念図（断面図）である。

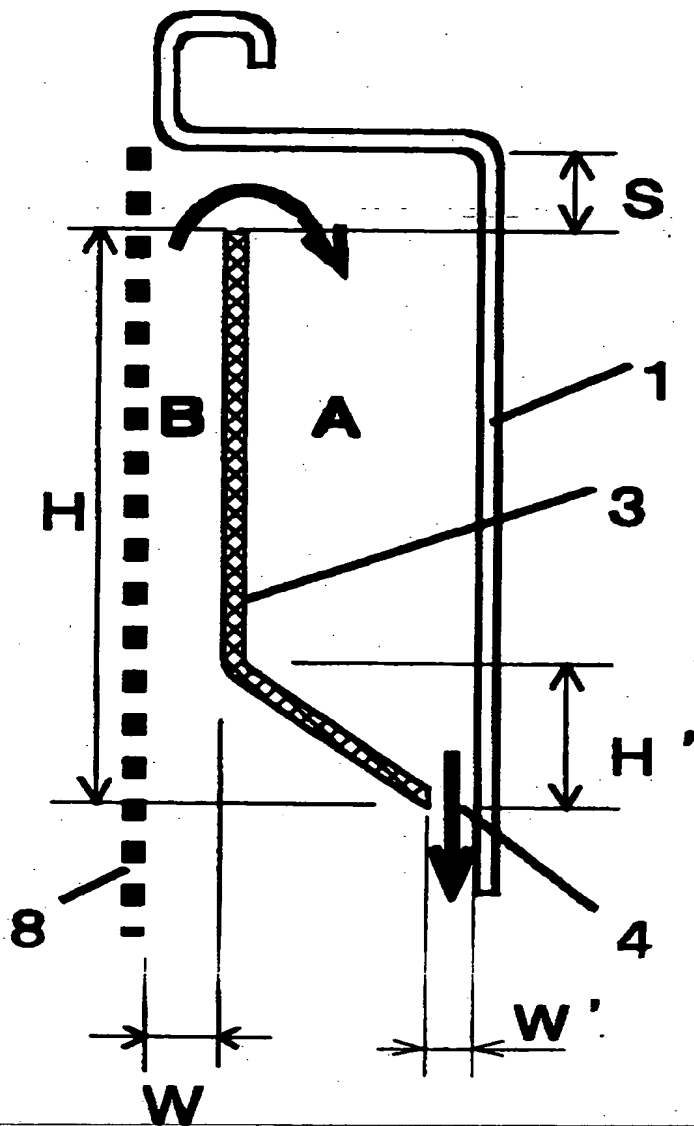
【符号の説明】

- 1 隔壁
- 2 多孔板
- 3 プレート
- 4 スリット状隙間
- 5 排出ノズル
- 6 リブ
- 7 入り口ノズル
- 8 電極
- 9 フレーム
- 10 陽極
- 11 陰極
- 12 リード板
- 13 陰極側ガスケット
- 14 イオン交換膜
- 15 陽極側ガスケット
- 16 複極式単位電解セル
- 17 締結体

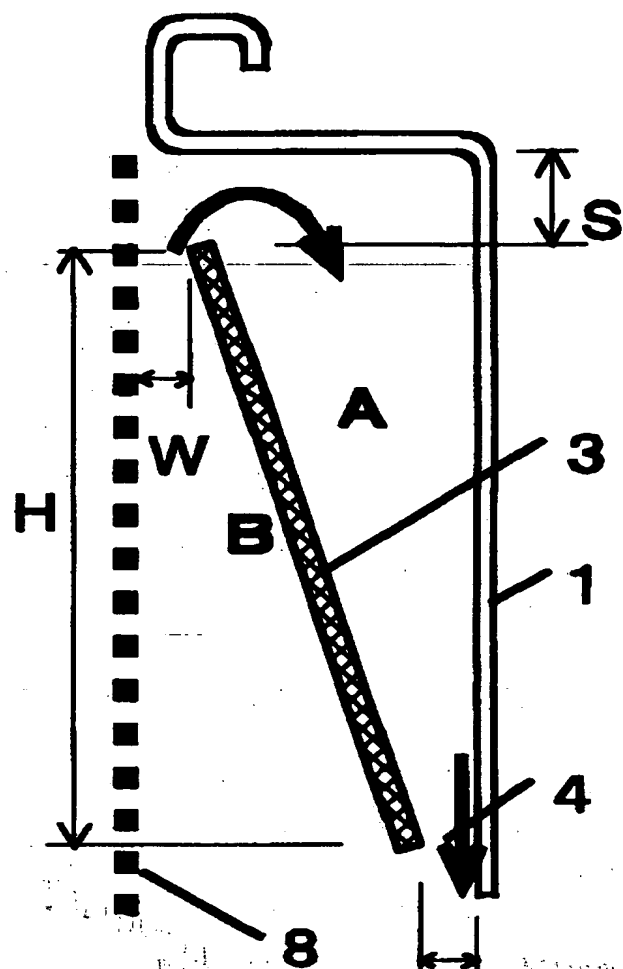
【書類名】

図面

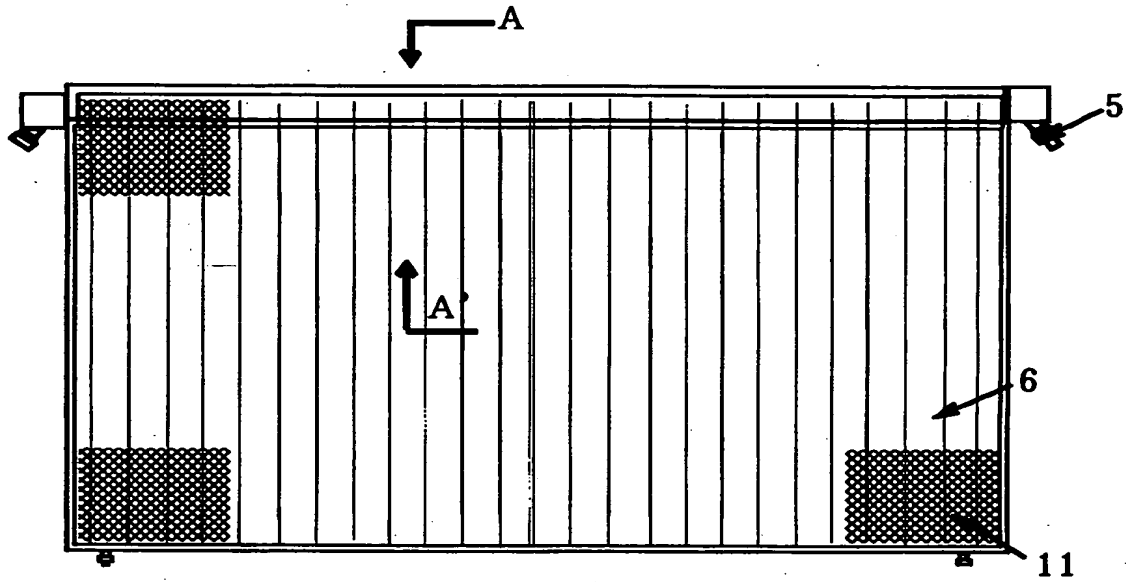
【図 1】



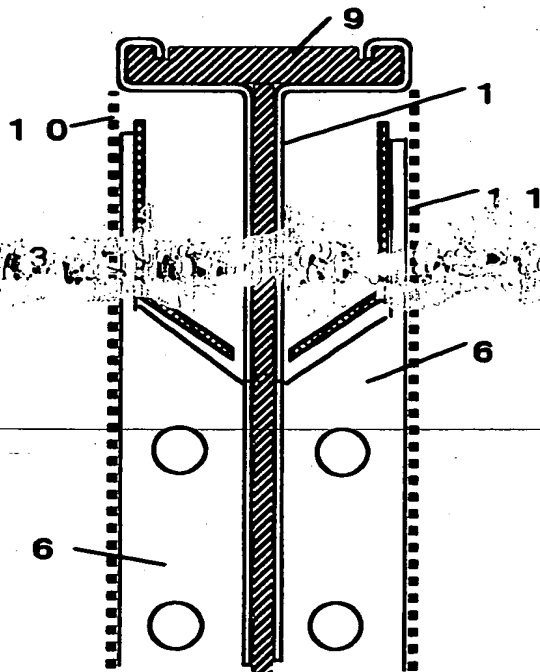
【図 2】



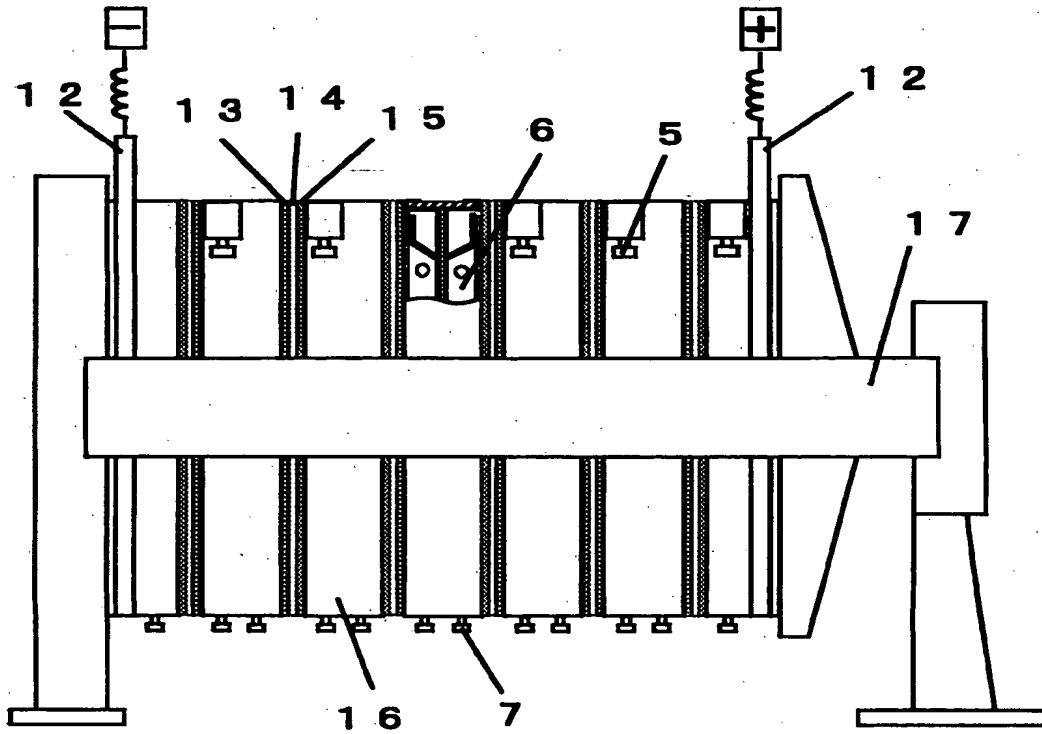
【图 3】



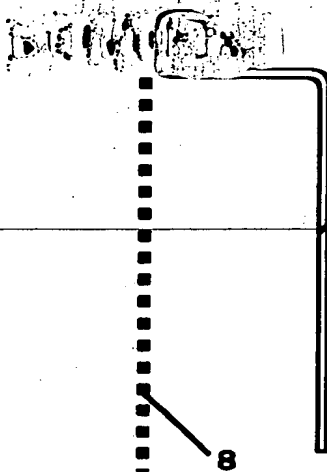
【图 4】



【図5】



【図6】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】

イオン交換膜法電解槽を用いて、高電流密で電解する場合、単位電解セル内での電解液濃度分布に不均一な部分を生じて、イオン交換膜の性能へ悪影響を与えないように、安価で簡便な部品を単位電解セルに取り付け、電解液濃度分布を均一にすることにより、イオン交換膜の性能を十分に発揮できる単位電解セルを提供することにある。

【解決手段】

陽極室上部にプレートが取り付けられた塩化アルカリ単位電解セルであって、極室内がプレートと電極とにより形成される通路Bと、プレートと隔壁とにより形成される通路Aとに仕切られており、該通路Bの幅が5 mm～15 mm、プレートと隔壁スリット状隙間の間隔W' が1 mm～20 mm、プレートの高さが300 mm～600 mmであることを特徴とする複極式単位電解セル。

【選択図】 図1



出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000000033]

1. 変更年月日 1990年 8月16日

[変更理由] 新規登録

住 所 大阪府大阪市北区堂島浜1丁目2番6号

氏 名 旭化成工業株式会社

THIS PAGE BLANK (USPTO)